

**EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

Anmeldenummer: 79103485.3

Anmeldetag: 17.09.79

Int. Cl.<sup>3</sup>: **C 07 D 231/12**  
**C 07 D 231/16, C 07 D 261/08**  
**C 07 D 261/10, C 07 D 275/02**  
**A 01 N 43/56, A 01 N 43/80**  
**//C07C103/365**

Priorität: 28.09.78 DE 2842315

Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
 30.04.80 Patentblatt 80/9

Benannte Vertragsstaaten:  
 AT BE CH DE FR GB IT NL

Anmelder: BAYER Aktiengesellschaft  
 Zentralbereich Patente, Marken und Lizenzen  
 Bayerwerk  
 D-5090 Leverkusen 1(DE)

Erfinder: Stetter, Jörg, Dr.  
 Pahlkestrasse 3  
 D-5600 Wuppertal 1(DE)

Erfinder: Ditzgens, Klaus, Dr.  
 Claudiusweg 7  
 D-5600 Wuppertal 1(DE)

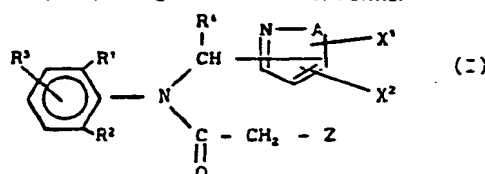
Erfinder: Thomas, Rudolf, Dr.  
 Wilkhausstrasse 129  
 D-5600 Wuppertal 2(DE)

Erfinder: Eue, Ludwig, Dr.  
 Paul-Klee-Strasse 36  
 D-5090 Leverkusen 1(DE)

Erfinder: Schmidt, Robert Rudolf, Dr.  
 Hahnenweg 5  
 D-5000 Köln 80(DE)

N-(1,2-Azoly)alkyl-halogenacetanilide, Verfahren zu ihrer Herstellung, ihre Verwendung als Herbizide sowie ihre Ausgangsprodukte und deren Herstellung.

Die Erfindung betrifft neue N-(1,2-Azoly)alkyl-halogenacetanilide der Formel



Halogenalkyl, Alkoxy-carbonyl, Dialkylamino, Cyano und gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy oder gegebenenfalls substituiertes Phenylthio steht,  
 Z für Halogen steht und der Azoly-Rest über ein Kohlenstoffatom gebunden ist,  
 sowie deren Säureadditions-Salze und Metallsalz-Komplexe, mehrere Verfahren zu deren Herstellung sowie die Verwendung der neuen Stoffe als Herbizide.

EP 0 010 166 A1

in welcher

A für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung >NR steht, wobei

R für Wasserstoff oder Alkyl steht,

R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Alkyl oder Alkoxy steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Halogen steht,

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Halogen steht,

R<sup>4</sup> für Wasserstoff oder Alkyl steht,

X<sup>1</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Halogen, Alkoxy, Alkylthio Halogenalkyl, Alkoxy-carbonyl, Dialkylamino, Cyano und gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy oder gegebenenfalls substituiertes Phenylthio steht,

X<sup>2</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Halogen, Alkoxy Alkylthio



BAYER AKTIENGESELLSCHAFT  
Zentralbereich  
Patente, Marken und Lizenzen

5090 Leverkusen, Bayerwerk  
Dü/AB  
Ib

BEZEICHNUNG GEÄNDERT  
siehe Titelseite

N-(1,2-Azolyl)alkyl-halogenacetanilide, Verfahren zu  
ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide

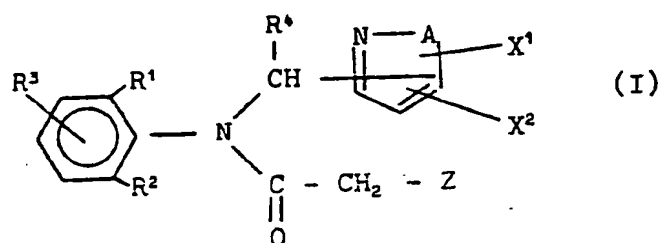
Die vorliegende Erfindung betrifft neue N-(1,2-Azolyl)alkyl-halogenacetanilide, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide.

5 Es ist bereits bekannt geworden, daß man 2,6-Diethyl-N-methoxymethyl-chloracetanilid zur selektiven Unkrautbekämpfung verwenden kann (vgl. R. Wegler, Chemie der Pflanzenschutz- und Schädlingsbekämpfungsmittel, Band 5, Seite 225, Springer-Verlag (1977)). Diese Verbindung ist jedoch nicht immer ausreichend wirksam und in ihrer  
10 Selektivität nicht immer ganz befriedigend.

Es wurden nun neue N-(1,2-Azolyl)alkyl-halogenacetanilide der Formel

Le A 19 121-Ausland

- 2 -



in welcher

- A für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung >NR steht, wobei
- 5 R für Wasserstoff oder Alkyl steht,
- R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Alkyl oder Alkoxy steht,
- R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Halogen steht,
- 10 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Alkoxy oder Halogen steht,
- R<sup>4</sup> für Wasserstoff oder Alkyl steht,
- 15 X<sup>1</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Halogen, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Alkoxy-carbonyl, Dialkylamino, Cyano und gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy oder gegebenenfalls substituiertes Phenylthio steht,
- 20 X<sup>2</sup> für Wasserstoff, Alkyl, Halogen, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Alkoxy-carbonyl, Dialkylamino, Cyano und gegebenenfalls substituiertes Phenyl,

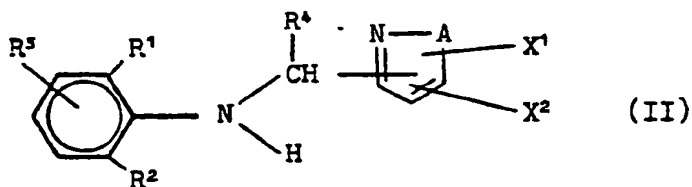
gegebenenfalls substituiertes Phenoxy oder  
gegebenenfalls substituiertes Phenylthio  
steht,

2 für Halogen steht und der Azolyl-Rest über  
5 ein Kohlenstoffatom gebunden ist,

sowie deren Säureadditions-Salze und Metallsalz-Komplexe gefunden.

Weiterhin wurde gefunden, daß man die N-(1,2-Azoly)-  
alkyl-halogenacetanilide der Formel (I) sowie deren  
10 Säureadditions-Salze und Metallsalz-Komplexe erhält,  
wenn man

a) N-(1,2-Azoly)alkyl-anilin $\ddot{\text{e}}$  der Formel



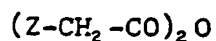
in welcher

15             $A, R^1, R^2, R^3, R^4,$   
 $X^1$  und  $X^2$             die oben angegebene Bedeutung  
                                  haben,

mit Halogenessigsäurechloriden oder -bromiden bzw. -anhydriden der Formeln

20  $Z - CH_2 - CO - Cl(Br)$  (IIIa)

bzw.



(IIIb)

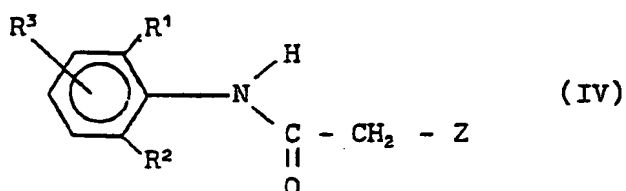
in welchen

Z

die oben angegebene Bedeutung  
hat,

- 5 in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls  
in Gegenwart eines Säurebindemittels umgesetzt, oder

b) Halogenacetanilide der Formel



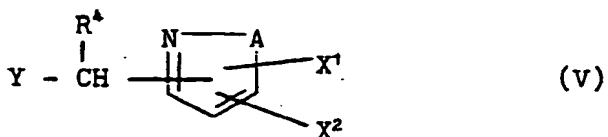
in welcher

10

R¹, R², R³

und Z die oben angegebene Bedeutung haben,

mit Azolyl-alkyl-Derivaten der Formel



in welcher

15

A, R⁴,

X¹ und X² die oben angegebene Bedeutung haben  
und

- 5 -

Y für Halogen, den Mesylat- oder  
Tosylat-Rest steht,

in Gegenwart eines Säurebinders und gegebenenfalls in  
Gegenwart eines organischen Lösungsmittels umgesetzt,  
5 und gegebenenfalls anschließend eine Säure oder ein Metall-  
salz addiert.

Die neuen N-(1,2-Azolyl)alkyl-halogenacetanilide der Formel  
(I) sowie deren Säureadditions-Salze und Metallsalz-Kom-  
plexe weisen starke herbizide, insbesondere selektiv-  
10 herbizide Eigenschaften auf.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen N-(1,2-  
Azolyl)alkyl-halogenacetanilide bei sehr guter Unkraut-  
wirkung bessere Möglichkeiten zum Einsatz als selektive  
Unkrautbekämpfungsmittel in wichtigen Kulturpflanzen als  
15 die zuvor erwähnte, vorbekannte Verbindung, welche ein  
gut wirksamer Stoff gleicher Wirkungsart ist. Die er-  
findungsgemäßen Stoffe stellen somit eine wertvolle Be-  
reicherung der herbiziden Mittel zur selektiven Unkraut-  
bekämpfung dar.

20 Die erfindungsgemäßen N-(1,2-Azolyl)alkyl-halogenacetanilide  
sind durch die Formel (I) allgemein definiert. In der  
Formel (I) steht A vorzugsweise für Sauerstoff, Schwefel  
oder die Gruppierung >NR, wobei R vorzugsweise für Wasser-  
stoff und geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4  
25 Kohlenstoffatomen steht. R<sup>1</sup> steht vorzugsweise für Wasser-  
stoff und geradkettiges oder verzweigtes Alkyl und Alkoxy  
mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen. R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> sind  
gleich oder verschieden und stehen jeweils vorzugsweise für  
Wasserstoff oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl und  
30 Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen sowie für die

Le A 19 121

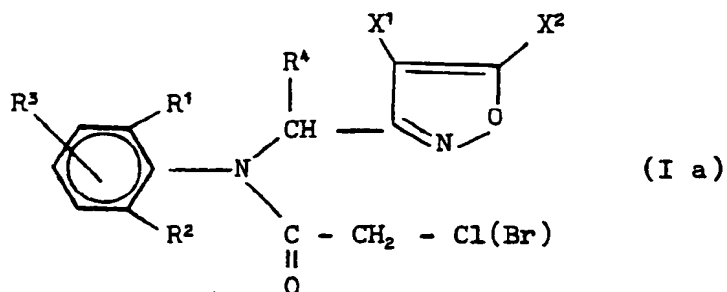
- 6 -

Halogene Fluor, Chlor und Brom.  $R^4$  steht vorzugsweise für Wasserstoff und Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen.  $X^1$  und  $X^2$  sind gleich oder verschieden und stehen vorzugsweise für Wasserstoff, für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylthio mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkoxycarbonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in der Alkoxygruppe, ferner vorzugsweise für die Halogene Fluor, Chlor und Brom, für Halogenalkyl mit bis zu 2 Kohlenstoff- und bis zu 5 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, wobei als Halogene insbesondere Fluor, Chlor und Brom genannt seien, für Dialkylamino mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in jedem Alkylteil und für Cyano.  $X^1$  und  $X^2$  stehen außerdem vorzugsweise für gegebenenfalls substituiertes Phenyl, gegebenenfalls substituiertes Phenoxy oder gegebenenfalls substituiertes Phenylthio, wobei als Substituenten vorzugsweise Halogen und Alkyl mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen in Frage kommen.  $Z$  steht vorzugsweise für die Halogene Chlor, Brom und Jod.

Ganz besonders bevorzugt sind diejenigen N-(1,2-Azoly)alkylhalogenacetanilide der Formel (I), in denen  $A$  für Sauerstoff, Schwefel oder die Gruppierung  $>NR$  steht, wobei  $R$  für Methyl, Ethyl, Propyl oder Butyl steht;  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Isopropyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Methoxy, Ethoxy oder Isopropoxy stehen,  $R^2$  und  $R^3$  außerdem auch für Chlor oder Brom stehen;  $R^4$  für Wasserstoff oder Methyl steht;  $X^1$  und  $X^2$  gleich oder verschieden sind und für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Methoxy, Ethoxy, Isopropoxy, Methylthio, Ethylthio, Isopropylthio, Methoxy-

carbonyl, Ethoxycarbonyl, Chlor, Brom, Chlormethyl, Brom-  
methyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl,  
Dimethylamino, Ethylmethylamino, Cyano oder gegebenenfalls  
durch Chlor und/oder Methyl substituiertes Phenyl, gege-  
5 benenfalls durch Chlor und/oder Methyl substituiertes Phe-  
noxy oder gegebenenfalls durch Chlor und/oder Methyl  
substituiertes Phenylthio stehen und Z für Chlor oder  
Brom steht.




Im einzelnen seien außer den bei den Herstellungsbeispielen  
10 genannten Verbindungen die folgenden Verbindungen der all-  
gemeinen Formel (I) genannt:



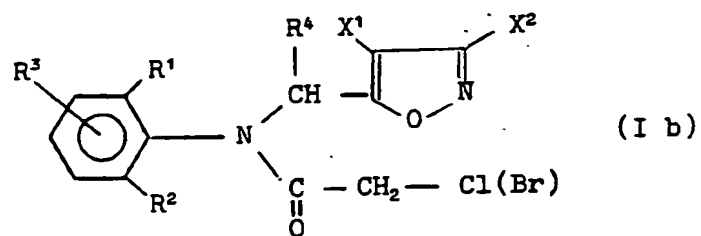


- 8 -

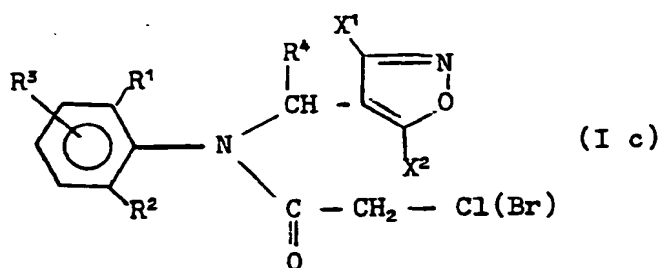
$R^1$	$R^2$	$R^3$	$R^4$	$X^1$	$X^2$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H
$C_2H_5$	$CH_3$	H	H	H	H
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H
$C(CH_3)_3$	H	H	H	H	H
$CH_3$	$CH_3$	H	$CH_3$	H	H
$C_2H_5$	$CH_3$	H	$CH_3$	H	H
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	$CH_3$	H	H
$C(CH_3)_3$	H	H	$CH_3$	H	H
$CH_3$	H	3- $CH_3$	H	H	H
$CH_3$	H	5- $CH_3$	H	H	H
$CH_3$	Cl	H	H	H	H
$C(CH_3)_3$	Cl	H	H	H	H
$CH_3$	$CH_3$	3- $CH_3$	H	H	H
$OCH_3$	$CH_3$	H	H	H	H
$OCH_3$	$OCH_3$	H	H	H	H
$OCH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	H
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$
$C(CH_3)_3$	H	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$C(CH_3)_3$	H	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$CH_3$	H	3- $CH_3$	H	H	$CH_3$
$CH_3$	H	5- $CH_3$	H	H	$CH_3$
$CH_3$	Cl	H	H	H	$CH_3$
$C(CH_3)_3$	Cl	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	3- $CH_3$	H	H	$CH_3$
$OCH_3$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$
$OCH_3$	$OCH_3$	H	H	H	$CH_3$
$OCH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	$C_2H_5$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	H	H	$C_2H_5$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	$C_2H_5$

- 3 -					
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Br
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>

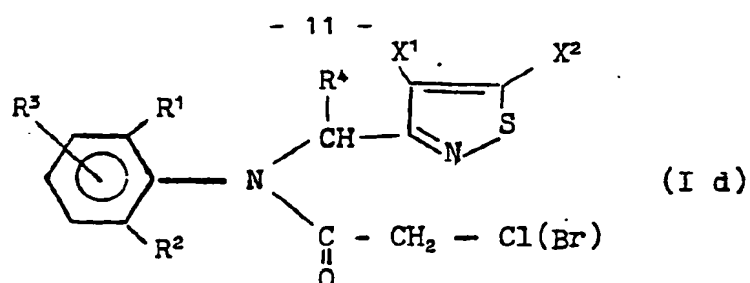
- 10 -



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>



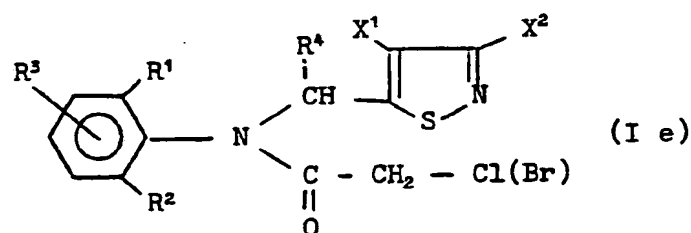
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>



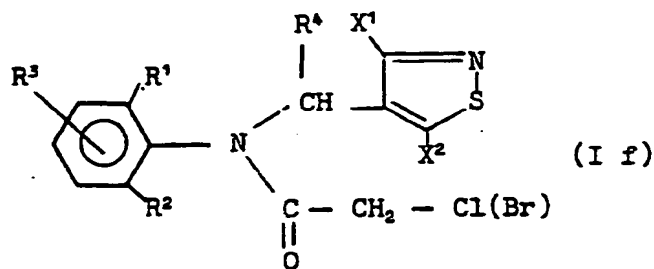
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	H	3-CH <sub>3</sub>	H	H	H
CH <sub>3</sub>	H	5-CH <sub>3</sub>	H	H	H
CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H
OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Br
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Br
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	Br	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H

- 12 -


R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CN	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CN	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CN	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>2</sub> Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>2</sub> Br
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>2</sub> Br
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	⊙

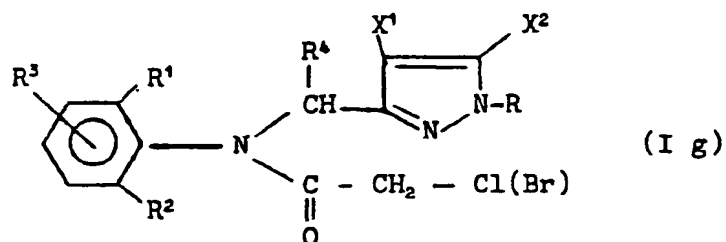


R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>



- 13 -

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	

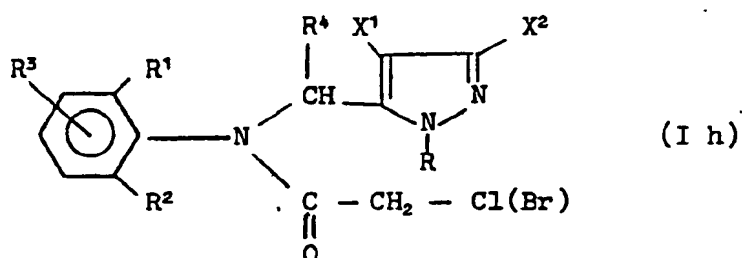


R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	H	3-CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	H	5-CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	H	3-CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	H	5-CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>

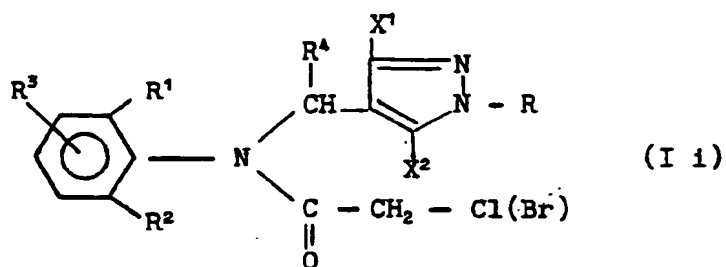
- 14 -

$R^1$	$R^2$	$R^3$	$R^4$	$X^1$	$X^2$	$R$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_2H_5$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_2H_5$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_2H_5$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_3H_7$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_3H_7$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_3H_7$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_4H_9$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_4H_9$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_4H_9$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$	$C_2H_5$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$	$C_2H_5$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$	$C_2H_5$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	$CH_3$	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	$CH_3$	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	$CH_3$	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	Cl	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	Cl	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	Cl	$CH_3$
$C(CH_3)_3$	H	H	H	H	Cl	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	Cl	$CH_3$	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	Cl	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	Cl	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	Cl	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	Cl	H	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	Cl	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	Br	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	Br	H	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	Br	H	$CH_3$

- 15 -



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>



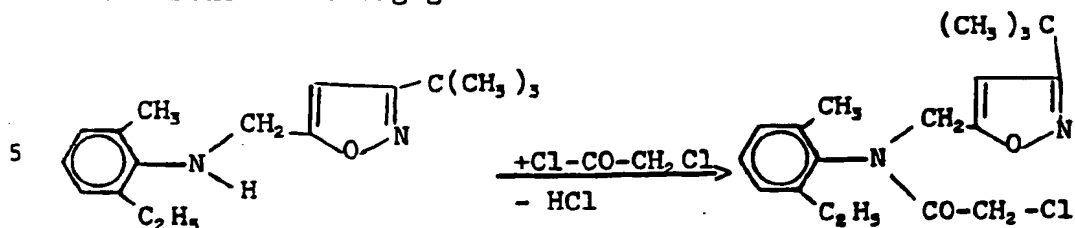
Bevorzugte erfindungsgemäße Verbindungen sind auch Additionsprodukte aus Säuren und denjenigen N-(1,2-Azoly1)alkyl-halogenacetaniliden der Formel (I), in denen A, R, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> und Z die Bedeutungen haben, die bereits vorzugsweise für diese Reste genannt wurden. Zu den Säuren, die addiert werden können, gehören vorzugsweise Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. die Chlorwasserstoffsäure und die Bromwasserstoffsäure, insbesondere die Chlorwasserstoffsäure, ferner Phosphorsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, mono- und bifunktionelle Carbonsäuren und Hydroxycarbonensäuren, wie z.B. Essigsäure, Maleinsäure, Bernsteinsäure, Fumarsäure, Weinsäure, Zitronensäure, Salizylsäure, Sorbinsäure, Milchsäure, sowie Sulfonsäure, wie z.B. p-Toluolsulfonsäure und 1,5-Naphthalindisulfonsäure.

Außerdem bevorzugte erfindungsgemäße Verbindungen sind Additionsprodukte aus Salzen von Metallen der II. bis IV. Haupt- und der I. und II. sowie IV. bis VII. Nebengruppe und denjenigen N-(1,2-Azoly1)alkyl-halogenacetaniliden der Formel (I), in denen A, R, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, X<sup>1</sup>, X<sup>2</sup> und Z die Bedeutungen haben, die bereits vorzugsweise für diese Reste genannt wurden. Hierbei sind Salze des Kupfers, Zinks, Mangans, Magnesiums, Zinns, Eisens und des Nickels besonders bevorzugt. Als Anionen dieser Salze kommen solche in Betracht, die sich von solchen Säuren ableiten, die zu physiologisch verträglichen Additionsprodukten führen.

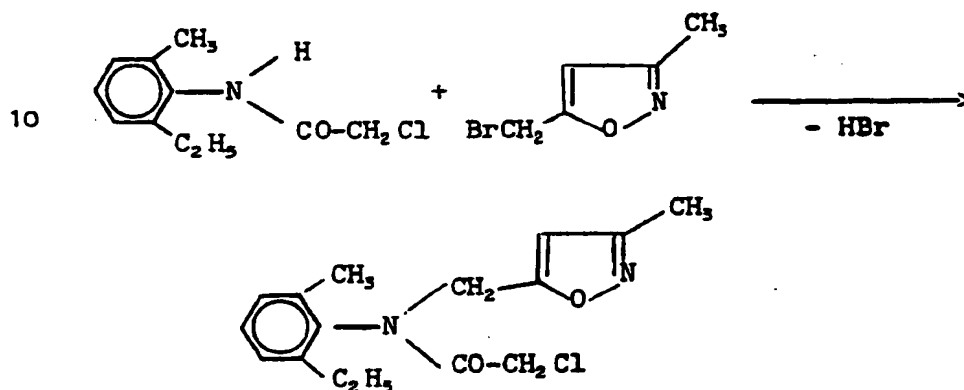
Besonders bevorzugte derartige Säuren sind in diesem Zusammenhang die Halogenwasserstoffsäuren, wie z.B. die Chlorwasserstoffsäure und die Bromwasserstoffsäure, ferner Phosphorsäure, Salpetersäure und Schwefelsäure.

- 17 -

Verwendet man 2-Ethyl-6-methyl-N-(3'-tert.-butyl-isoxazol-5'-yl-methyl)-anilin und Chloracetylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden (Verfahrensvariante a):

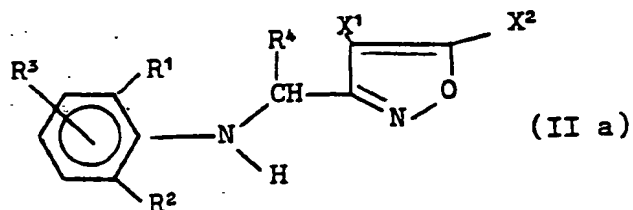


Verwendet man 2-Ethyl-6-methyl-chloracetanilid und 5-Brom-methyl-3-methyl-isoxazol als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden (Verfahrensvariante b):






Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten N-Azolylalkyl-aniline sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel stehen  $\underline{\text{A}}$ ,  $\underline{\text{R}}^1$ ,  $\underline{\text{R}}^2$ ,  $\underline{\text{R}}^3$ ,  $\underline{\text{R}}^4$ ,  $\underline{\text{X}}^1$  und  $\underline{\text{X}}^2$  vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) vorzugsweise für diese Reste genannt wurden.

Beispiele für Verbindungen der Formel (II) seien im  
 einzelnen die folgenden Verbindungen genannt:

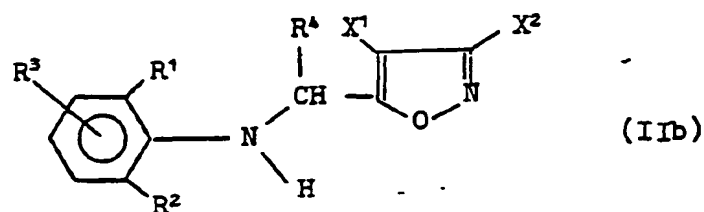


R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
CH <sub>3</sub>	H	3-CH <sub>3</sub>	H	H	H
CH <sub>3</sub>	H	5-CH <sub>3</sub>	H	H	H
CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	H	H	H
OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
OCH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	H	3-CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	H	5-CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	CH <sub>3</sub>

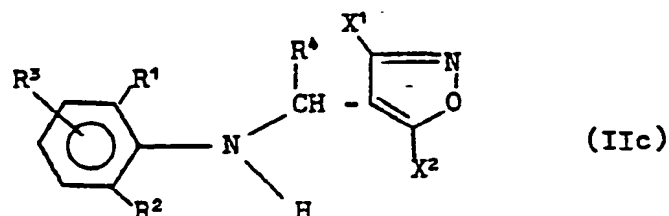
- 19 -

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	3-CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
OCH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Br
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>

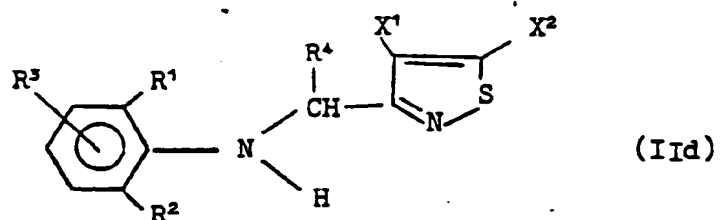
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	1-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	1-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>




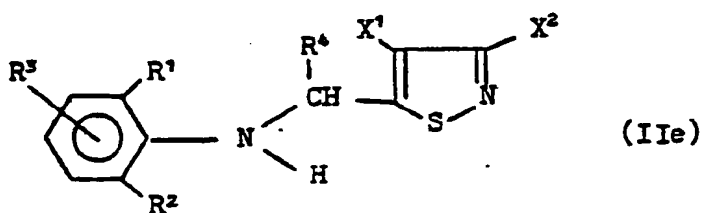
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	H	H
CH <sub>3</sub>	H	3-CH <sub>3</sub>	H	H	H
CH <sub>3</sub>	H	5-CH <sub>3</sub>	H	H	H
CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	Cl	H	H	H	H
OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>

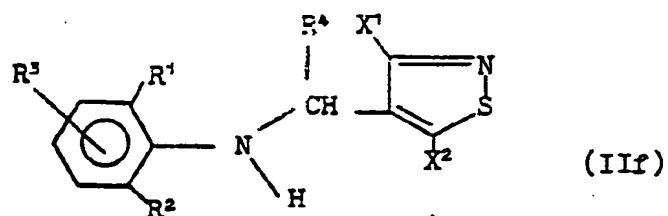
- 22 -

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Br
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Br
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	Br	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CN	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CN	H
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CN	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>2</sub> Br
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>2</sub> Br
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>2</sub> Br
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	

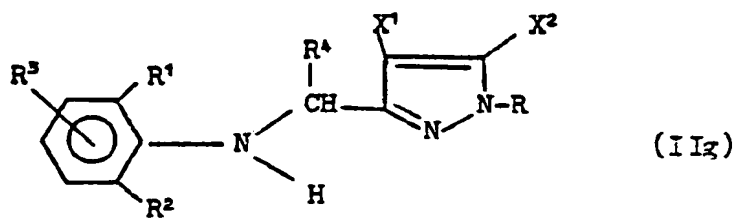


- 23 -

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>
CH <sub>3</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	

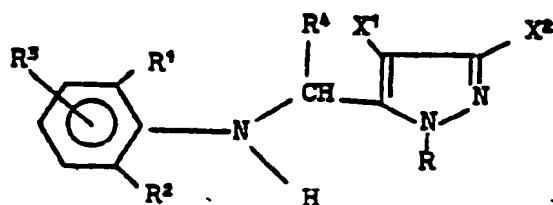




$R^1$	$R^2$	$R^3$	$R^4$	$X^1$	$X^2$	$R$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	H	H	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	$CH_3$	H	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	$CH_3$	H	H	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	$CH_3$	H	H	$CH_3$
$CH_3$	H	3- $CH_3$	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	H	5- $CH_3$	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	Cl	H	H	H	H	$CH_3$
$OCH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$CH_3$
$C(CH_3)_3$	Cl	H	H	H	H	$CH_3$
$OCH_3$	$OCH_3$	H	H	H	H	$CH_3$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$C(CH_3)_3$	H	H	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	H	3- $CH_3$	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	H	5- $CH_3$	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$OCH_3$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	Cl	H	H	H	$CH_3$	$CH_3$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_2H_5$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_2H_5$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_2H_5$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_3H_7$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_3H_7$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_3H_7$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_4H_9$
$C_2H_5$	$C_2H_5$	H	H	H	H	$C_4H_9$
$C_2H_5$	$CH_3$	H	H	H	H	$C_4H_9$
$CH_3$	$CH_3$	H	H	H	$CH_3$	$C_2H_5$
$CH_3$	$C_2H_5$	H	H	H	$CH_3$	$C_2H_5$

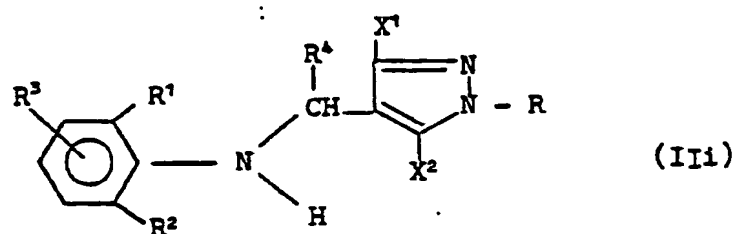
- 25 -

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
C(CH <sub>3</sub> ) <sub>3</sub>	H	H	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Br	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Br	H	CH <sub>3</sub>



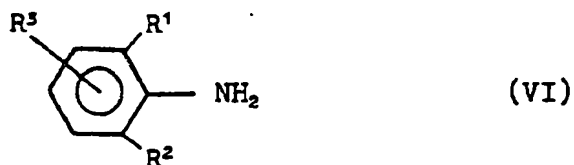
(Ib)

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	Cl	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>



R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	X <sup>1</sup>	X <sup>2</sup>	R
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>

Die N-(1,2-Azoly)alkyl-aniline der Formel (II) sind noch nicht bekannt. Man erhält sie, wenn man Aniline der Formel



in welcher

$R^1$ ,  $R^2$

und  $R^3$  die oben angegebene Bedeutung haben,

5 c) mit Azolylalkyl-Derivaten der Formel



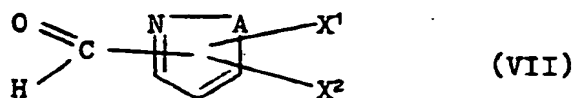
in welcher

$A$ ,  $R^4$ ,  $X^1$ ,  $X^2$  und  $Y$  die oben angegebene Bedeutung haben,

10 in Gegenwart eines Säurebinders und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

oder

8) mit Azol-aldehyden der Formel



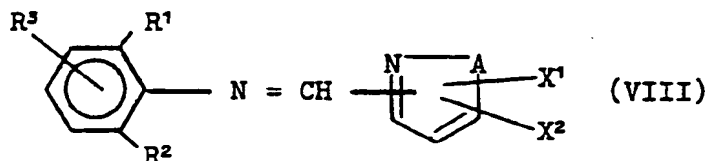
15

in welcher

$A$ ,  $X^1$

und  $X^2$  die oben angegebene Bedeutung haben.

in Gegenwart eines inerten organischen Lösungsmittels und gegebenenfalls eine Katalysators umgesetzt und die entstehenden Imine der Formel



5 in welcher

A, R¹, R², R³,

X¹ und X² die oben angegebene Bedeutung haben,

10 gegebenenfalls in Gegenwart eines polaren Verdünnungsmittels reduziert.

Bei dem Verfahren (B) entstehen ausschließlich solche Verbindungen der Formel (II), in denen R⁴ Wasserstoff bedeutet.

15 Die bei der Herstellung der N-(1,2-Azoly)alkyl-aniline der Formel (II) als Ausgangsstoffe benötigten Aniline der Formel (VI) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie. Als Beispiele seien genannt:

20 Anilin; 2-Methylanilin; 2-Ethylanilin; 2-Isopropylanilin; 2-sek.-Butylanilin; 2-tert.-Butylanilin; 2,6-Dimethylanilin; 2,3-Dimethylanilin; 2,5-Dimethylanilin; 3,5-Dimethylanilin; 2,6-Diethylanilin; 2-Ethyl-6-methyl-anilin; 2,3,4-Trimethylanilin; 2,4,6-Trimethylanilin; 2,4,5-

- 29 -

Trimethylanilin; 2-Ethyl-4,6-dimethylanilin; 2,6-Diethyl-4-methylanilin; 2,6-Diisopropyl-4-methylanilin; 2,3,5-Trimethylanilin; 2,3,6-Trimethylanilin; 2-Methyl-6-chloranilin; 2-tert.-Butyl-6-chloranilin; 2-Methoxy-6-methylanilin; 2,6-Dimethoxyanilin; 2-Methoxy-6-ethylanilin; 2,6-Diethoxyanilin.

Die bei der Herstellung der N-(1,2-Azoly)alkyl-aniline der Formel (II) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Azol-aldehyde der Formel (VII) sind bekannt (vgl. z.B. Arch. Pharm. 264 (1926); J. Chem. Soc. 1957, 3314 und 1964, 3114) bzw. können nach den dort beschriebenen Verfahren erhalten werden.

Bei der Herstellung der N-(1,2-Azoly)alkyl-aniline der Formel (II) nach dem Verfahren (d) können als Säurebinder alle üblichen Säureakzeptoren verwendet werden. Vorzugsweise in Betracht kommen Alkalicarbonat wie Kalium- oder Natriumcarbonat.

Als Verdünnungsmittel können bei dem Verfahren (d) alle üblichen inerten organischen Lösungsmittel eingesetzt werden. Vorzugsweise in Betracht kommen Dimethylformamid und Toluol.

Die Reaktionstemperaturen können bei dem Verfahren (d) innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man zwischen 0°C und 180°C, vorzugsweise zwischen 20°C und 160°C.

Bei der Umsetzung nach dem Verfahren (d) setzt man die Aniline der Formel (VI) und die Azolyalkyl-Derivate der Formel (V) im allgemeinen in äquimolaren Mengen ein. Es

ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten, vorzugsweise das Anilin der Formel (VI), in einem Überschuß einzusetzen. Die Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach üblichen Methoden.

- 5 Bei der Herstellung der N-(1,2-Azoly)alkylaniline der Formel (II) nach dem Verfahren (B) können in der ersten Stufe als inerte organische Lösungsmittel alle üblichen derartigen Solventien verwendet werden. Vorzugsweise in Betracht kommen aromatische Lösungsmittel, wie Toluol.

- 10 Als Katalysatoren können bei der Umsetzung (B) in der ersten Stufe alle für derartige Additionen üblichen Reaktionsbeschleuniger verwendet werden. Vorzugsweise in Frage kommen starke organische Säuren, wie p-Toluolsulfonsäure.

15 In der zweiten Stufe des Verfahrens (B) können als Lösungsmittel alle inerten polaren organischen Solventien verwendet werden. Vorzugsweise in Betracht kommen Alkohole, wie Methanol.

- 20 Als Reduktionsmittel können bei der Durchführung der zweiten Stufe des Verfahrens (B) vorzugsweise komplexe Hydride, wie zum Beispiel Natriumborhydrid, verwendet werden.

- 25 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des Verfahrens (B) sowohl in der ersten als auch in der zweiten Stufe innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. In der ersten Stufe arbeitet man im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 40°C und 140°C,

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**